

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : **2002-042828**

(43)Date of publication of application : **08.02.2002**

(51)Int.Cl.

H01M 8/02
// H01M 8/10

(21)Application number : **2000-223668**

(71)Applicant : **HONDA MOTOR CO LTD**

(22)Date of filing : **25.07.2000**

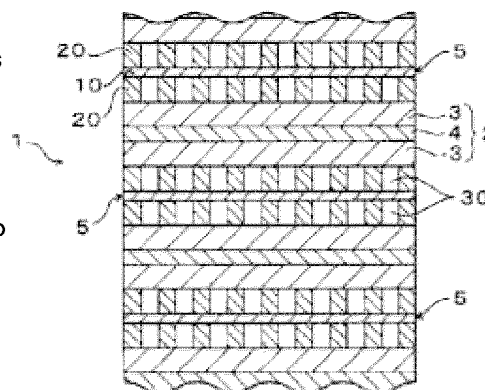
(72)Inventor : **TSUJI MAKOTO**
UTSUNOMIYA MASAO
OTANI TERUYUKI
SAITO NOBUHIRO

(54) FUEL CELL SEPARATOR

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a fuel cell separator having both of characteristics of a graphite material such as corrosion resistance and electric conductivity and mechanical strength of a metal plate material at high level and facilitating the formation of gas passages.

SOLUTION: This fuel cell separator is provided with a plurality of projecting bars 20 comprising a metal plate 10, and the graphite materials projecting from the metal plate 10 to a gas diffusion electrode plate 3 side so as to contact with the gas diffusion electrode plate 3, and forming the gas passage 30. Inter-metal chemicals are deposited on the projecting faces of the projecting bars 20 in the metal plate 10 and the gas passages 30 are partitioned by the surface 11 of the exposed metal plate 10 and a pair of side face 21 of the adjoining projecting bars 20.



(19)日本国特許庁 (J P)

(12)公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-42828

(P 2 0 0 2 - 4 2 8 2 8 A)

(43)公開日 平成14年2月8日(2002.2.8)

(51)Int.Cl.⁷

識別記号

F I

テーマコード* (参考)

H01M 8/02

H01M 8/02

B 5H026

// H01M 8/10

8/10

審査請求 有 請求項の数 1 O L (全7頁)

(21)出願番号 特願2000-223668(P 2000-223668)

(22)出願日 平成12年7月25日(2000.7.25)

(71)出願人 000005326

本田技研工業株式会社

東京都港区南青山二丁目1番1号

(72)発明者 辻 誠

埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会
社本田技術研究所内

(72)発明者 宇都宮 政男

埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会
社本田技術研究所内

(74)代理人 100096884

弁理士 未成 幹生

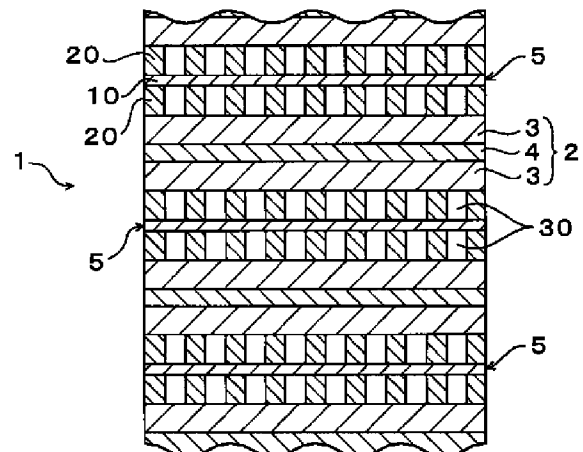
最終頁に続く

(54)【発明の名称】燃料電池用セパレータ

(57)【要約】

【課題】 耐食性や電気伝導性といった黒鉛系材料が備える特性と、金属板材料が備える機械的強度とが高いレベルで両立し、しかも、ガス通路の形成が容易な燃料電池用セパレータを提供する。

【解決手段】 金属板10と、金属板10からガス拡散電極板3側に突出してガス拡散電極板3と接触し、かつ、ガス通路30を形成する黒鉛系材料からなる複数の凸条20とを備える。金属板10における凸条20の突出面には金属間化合物が析出しており、ガス通路30を、露出する金属板10の表面11と、隣り合う凸条20の一对の側面21とにより画成する



【特許請求の範囲】

【請求項1】 一対のガス拡散電極板の間に電解質層を挟んでなる平板状の電極の両側に積層され、前記各ガス拡散電極板との間にガス通路を形成する燃料電池用セパレータであって、

金属板と、この金属板から前記ガス拡散電極板側に突出して該ガス拡散電極板と接触し、かつ、前記ガス通路を形成する黒鉛系材料からなる複数の凸条とを備え、前記金属板における前記凸条の突出面には金属間化合物が析出しており、前記ガス通路は、露出する前記金属板の表面と、隣り合う前記凸条の一対の側面とにより画成されることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、固体高分子型燃料電池の構成要素であって、該電池のガス通路を形成するセパレータに関する。

【0002】

【従来の技術】 固体高分子型燃料電池は、平板状の電極の両側にセパレータが積層された積層体が1ユニットとされ、複数のユニットが積層されて燃料電池スタックとして構成される。電極は、一対のガス拡散電極板（正極板と負極板）の間にイオン交換樹脂等からなる電解質層が挟まれた三層構造である。セパレータには、ガス拡散電極板との間にガスを流通させるガス通路が形成されている。このような燃料電池によると、例えば、負極側のガス拡散電極板に面するガス通路に燃料として水素ガスを流し、正極側のガス拡散電極板に面するガス通路に酸素や空気等の酸化性ガスを流すと電気化学反応が起こり、電気が発生する。

【0003】 ところで、上記セパレータの従来の材料は、概ね黒鉛系材料と金属系材料とに分けられる。黒鉛系材料としては、焼成された等方性黒鉛にフェノール等の樹脂を含浸させたガス不浸透性黒鉛、フェノール等の樹脂を成形後に焼成させたアモルファスカーボン、樹脂と黒鉛からなる複合成形材料等が挙げられる。一方、金属系材料としては、ステンレス鋼、チタン合金等の高耐食性金属や、これら金属の表面に金、白金等の貴金属めっきを被覆させたものが挙げられる。上記黒鉛系材料は、燃料電池の内部環境において耐食性が高くきわめて安定で、電気伝導性も良好であり、しかも接触抵抗が低いといった優れた特性を有する。また、上記金属系材料は、機械的強度に優れている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 ところが、上記黒鉛系材料および金属系材料では、次のような欠点があった。まず、黒鉛系材料のガス不浸透性黒鉛は、硬さが高いため切削加工によってガス通路を形成し難く、手間とコストが著しくかかっていた。また、アモルファスカーボン

は、焼成時に収縮や変形が生じ、寸法安定性に劣っていた。また、樹脂／黒鉛の複合成形材料は、機械的強度や耐衝撃強度が低く、製造時や組立時にクラックが発生しやすかった。一方、金属系材料では、ガス通路をプレス加工等によって形成しているが、発電性能を最大限発揮させるために複雑で微細なガス通路を形成することは困難であった。

【0005】 したがって本発明は、耐食性や電気伝導性といった黒鉛系材料が備える特性と、金属板材料が備える機械的強度とが高いレベルで両立し、しかも、ガス通路の形成が容易で生産性の向上を図ることのできる燃料電池用セパレータの提供を目的としている。

【0006】

【課題を解決するための手段】 本発明は、一対のガス拡散電極板の間に電解質層を挟んでなる平板状の電極の両側に積層され、各ガス拡散電極板との間にガス通路を形成する燃料電池用セパレータであって、金属板と、この金属板からガス拡散電極板側に突出して該ガス拡散電極板と接触し、かつ、ガス通路を形成する黒鉛系材料からなる複数の凸条とを備え、金属板における凸条の突出面には金属間化合物が析出しており、ガス通路は、露出する金属板の表面と、隣り合う凸条の一対の側面とにより画成されることを特徴としている。

【0007】 本発明のセパレータによれば、金属板が基材となっており、特に、応力が集中するガス通路の形成部すなわち肉薄部が金属板により構成されているので、機械的強度が高い。よって薄層化および軽量小型化が図られる。また、金属板の存在によりガス不透過性を有しているので、ガス漏れによる発電能力の低下が防止される。ガス拡散電極板に接触する凸条は黒鉛系材料からなるので電気抵抗が低く、よって電気伝導性が高い。また、金属板の表面には金属間化合物が析出しているので、金属板の耐食性は高く、凸条も黒鉛系材料でできているので、総合的に優れた耐食性を有している。

【0008】 本発明における金属板としては、例えば、ステンレス鋼、チタン合金等を材料とした薄板が好適に用いられる。また、本発明の凸条を構成する黒鉛系材料としては、例えば、膨張黒鉛、膨張黒鉛と樹脂の複合材料、黒鉛と樹脂の複合材料、焼成黒鉛、アモルファスカーボン、炭素繊維複合材料、炭素繊維－カーボン複合材料等が好適に用いられる。

【0009】 上記黒鉛系材料を詳述すると、膨張黒鉛は、原料である天然黒鉛を精製後、酸処理し、さらに高温高压下で黒鉛のC軸（黒鉛結晶構造の六角網面間隙）方向を拡大させることにより黒鉛に可撓性を付与させたもので、圧縮成形等により所望の形状に成形することができる。膨張黒鉛と樹脂の複合材料としては、膨張黒鉛の圧縮成形時にフェノール樹脂等のバインダ樹脂を混合させたもの等が挙げられる。黒鉛と樹脂の複合材料としては、人工黒鉛粉体とフェノール樹脂等のバインダ樹脂

とを混合し、圧縮成形されるもの等が挙げられる。焼成黒鉛は、フィラーとして石炭コークスを用い、また、バインダとしてピッチを用いて成形した後、2000～2500℃で焼成し、さらにピッチの含浸焼成を繰り返して緻密化させたものである。アモルファスカーボンは、フェノール樹脂を成形し、その成形体を1500℃程度で焼成させた非結晶質炭素である。炭素繊維複合材料は、炭素の質量含有率が90%以上からなる繊維状のカーボン材料を、フェノール樹脂等をバインダとして圧縮成形させたものである。炭素繊維-カーボン複合材料は、炭素繊維複合材料を2000℃以上で焼成させたものである。

【0010】金属板から突出する黒鉛系材料からなる凸条は、金属板に対して任意の手段により固着される。固着手段としては、例えば、予め成形された凸条を接着や圧着等の手段によって金属板に固着させる手段が挙げられる。また、金属板に対して黒鉛系材料の粉末を圧縮または射出して凸条を圧粉成形し、これを焼結して金属板に接合させることもできる。この場合、凸条が係合する孔を金属板に設けておくと、金属板に対する凸条の固着力が向上するとともに、電気抵抗がより低くなって電気伝導性が高まる。これらの凸条の成形手段ならびに固着手段によれば、複雑で微細なガス通路を比較的容易に形成することができ、その結果、発電性能の向上が図られる。

【0011】上記のように金属板に固着された凸条は、金属板の表面に析出する金属間化合物に接触する。この金属間化合物は電気抵抗が低いので、金属板の基地に接触する場合と比較すると接触抵抗がきわめて低い。したがって、良好な電気伝導性を有し、高い発電性能が発揮される。なお、電気抵抗が低い金属間化合物としてはFe-Cr系炭化物が挙げられる。したがって、金属板としてステンレス鋼を用い、凸条が固着される表面にFe-Cr系炭化物を析出させると大いに有効である。

【0012】

【発明の実施の形態】以下、図面を参照して本発明の一実施形態を説明する。図1は、一実施形態のセパレータが適用された固体高分子型燃料電池である燃料電池スタック1の層構成を概念的に示した図である。図1で符号2は平板状の電極であり、この電極2は、一対のガス拡散電極板（正極板と負極板）3の間にイオン交換樹脂等からなる電解質層4が挟まれた三層構造である。この電極2の上下には一実施形態に係るセパレータ5がそれぞれ積層されており、これらセパレータ5と電極2による積層体が1ユニットとされ、複数のユニットが積層されて燃料電池スタック1が構成されている。

【0013】セパレータ5は、図2に示すように、1枚のステンレス鋼製金属板10と、この金属板10の両面から間隔をおいて突出する複数の凸条20とから構成されている。凸条20は膨張黒鉛により成形されたもの

で、金属板10の表面に固着されており、隣り合う凸条20間に、溝状のガス通路30が形成されている。金属板10の厚さは、例えば0.15mmとされる。また、凸条20の厚さは、例えば0.6mmとされる。金属板10の両面全面には、所定の熱処理後、酸処理が施されることによってFe-Cr系炭化物からなる金属間化合物が析出し、かつ突出している。ガス通路30は、金属間化合物が突出する露出した金属板10の表面11と、隣り合う凸条20の互いに対向する一対の側面21とにより画成されており、その幅は、例えば1mmである。

【0014】上記凸条20は、金属板10に対して、予め成形されたものが接着剤により接着されている。その際に用いられる接着剤は、導電性を有し、かつ、電気抵抗の低い黒鉛粉や金属粉が混入されたものが用いられる。金属板10への凸条20の固着手段はこれに限られず、例えば、金属板10に対して黒鉛系材料からなる粉末を圧縮または射出して凸条20を圧粉成形し、これを焼結して金属板10に接合させてもよい。この場合、図3に示すように、凸条20が係合する孔12を金属板10に設け、この孔12に凸条20の一部として黒鉛系材料を埋め込む形態を採ることができる。このような形態によれば、金属板10に対する凸条20の固着力が向上するとともに、電気抵抗がより低くなって電気伝導性が高まるという利点がある。これらの凸条20の成形手段ならびに固着手段によれば、複雑で微細なガス通路30を比較的容易に形成することができ、その結果、発電性能の向上が図られる。

【0015】上記セパレータ5は、図1に示すように、各ガス拡散電極板3の表面に凸条20の表面が所定圧力が付与されて接触する状態に積層される。したがって、ガス通路30は、実質的にはガス拡散電極板3の表面と、金属板10の表面11と、これらの間の凸条20の側面21とにより画成される。

【0016】上記燃料電池スタック1においては、例えば、負極側のガス拡散電極板3に面するガス通路30に燃料として水素ガスが流通され、正極側のガス拡散電極板3に面するガス通路30に酸素や空気等の酸化性ガスが流通される。そして、このようなガス流通により電気化学反応が起こり、電気が発生する。

【0017】本実施形態のセパレータ5によれば、金属板10が基材となっており、特に、応力が集中するガス通路30の形成部すなわち肉薄部が金属板10で構成されているので、機械的強度が高い。よって薄層化および軽量小型化が図られる。また、金属板10の存在によりガス不透過性を有しているため、ガス漏れによる発電能力の低下が防止される。ガス拡散電極板3に接触する凸条20は膨張黒鉛からなるので電気抵抗が低く、よって電気伝導性が高い。また、金属板10の表面には金属間化合物が析出しているため金属板10の耐食性は高く、凸条20も膨張黒鉛でできているので、総合的に優れた

耐食性を有している。

【0018】また、金属板10に固着された凸条20は、金属板10の表面に析出する金属間化合物に接触しており、この金属間化合物は電気抵抗が低いので、金属板10の基地に接触する場合と比較すると接触抵抗がきわめて低い。したがって、良好な電気伝導性を有し、高い発電性能が発揮される。とりわけ本実施形態の金属間化合物は電気抵抗がきわめて低いFe-Cr系炭化物なので、高い電気伝導性を効果的に得ることができる。

【0019】

【実施例】次に、実施例を示して本発明の効果を実証す

る。各種ステンレス鋼に2段階の熱処理（熱処理1、2）を施した後、酸処理を施して実施例1～5のセパレータ用金属板を得た。そして、これら金属板の初期接触抵抗と劣化後接触抵抗を調べた。ステンレス鋼の種類、熱処理および酸処理の条件と、各抵抗を表1に示す。また、表1に併記したように、熱処理後、酸処理を施さないステンレス鋼を、比較例1～9のセパレータ用金属板として得た。

【0020】

10 【表1】

	材質	熱処理 1	熱処理 2	酸処理	黒鉛／金属		金属同士	
					初期接触抵抗 ($m\Omega \cdot cm^2$)	劣化後接触抵抗 ($m\Omega \cdot cm^2$)	初期接触抵抗 ($m\Omega \cdot cm^2$)	劣化後接触抵抗 ($m\Omega \cdot cm^2$)
実施例 1	SUS420J2	1300℃保持	780℃保持	有	20～50	40～50	1～3	0～15
実施例 2	SUS410	1300℃保持	780℃保持	有	20～50	70～90	1～3	15～20
実施例 3	SUS440	1300℃保持	600℃保持	有	20～50	70～95	1～3	30～50
実施例 4	SUS304	1050℃急冷	800℃保持	有	20～50	90～110	1～3	30～50
実施例 5	SUS316	1050℃急冷	800℃保持	有	20～50	90～110	1～3	30～50
比較例 1	SUS420J2	1300℃保持	750℃急冷	無	50～70	200～300	1～3	180～200
比較例 2	SUS410	1300℃保持	750℃急冷	無	50～70	200～300	1～3	180～200
比較例 3	SUS440	1300℃保持	600℃保持	無	50～70	200～300	1～3	180～200
比較例 4	SUS304	1050℃急冷	無	無	50～70	200～300	1～3	180～200
比較例 5	SUS316	1050℃急冷	無	無	50～70	200～300	1～3	180～200
比較例 6	SUS420J2	1300℃保持	780℃保持	無	50～70	200～300	1～3	180～200
比較例 7	SUS410	1300℃保持	780℃保持	無	50～70	200～300	1～3	180～200
比較例 8	SUS440	1300℃保持	500℃保持	無	50～70	200～300	1～3	180～200
比較例 9	SUS304	1050℃急冷	800℃保持	無	50～70	200～300	1～3	180～200

【0021】熱処理1は溶体化処理であって、所定の温度に保持して組織をオーステナイト相化させた後に冷却する。熱処理2は所定温度で所定時間保持し、金属間化合物を析出させる。実施例1～5に適用した酸処理は、80℃の硫酸第二鉄と硫酸の混合液（硫酸第二鉄5～10%、硫酸25～30%）中にステンレス鋼を5分間浸漬してステンレス鋼の表面の基地を溶解し、熱処理2によって析出した金属間化合物を数 μm 程度表面に突出させる。

【0022】ここで、熱処理に伴う金属間化合物の析出のメカニズムを説明する。マルテンサイト系ステンレス鋼（Fe-14wt%Cr-0.25wt%Mn-0.4wt%C-0.4wt%Si）においては、熱力学計算によると、図4に示すように、フェライト相と平衡する炭化物相は鋼中のCr含有量とともに M_7C_3 （850℃） $\rightarrow M_{23}C_6$ の順に高Cr相に変化し、 $M_{23}C_6$ が平衡炭化物相となる。例えば、実施例1のステンレ

ス鋼：SUS420J2では、1300℃付近に保持する溶体化処理によってオーステナイト相化させた後、840℃に保持して炭化物粒子を析出させ、次いで780℃に長時間保持することにより、 $M_{23}C_6$ の安定な炭化物に変態する。特にマルテンサイト系あるいはフェライト系ステンレス鋼の場合には、一次析出炭化物粒子の内部あるいはその周辺にCrが拡散し、数 μm レベルの比較的大きな、かつ、安定した炭化物が析出する。

【0023】また、オーステナイト系ステンレス鋼（Fe-18wt%Cr-8wt%Ni-0.08wt%C）においては、熱力学計算によると、図5に示すように、オーステナイト相と平衡する炭化物相は825℃付近から $M_{23}C_6$ の安定した炭化物が析出する。例えば、実施例4のステンレス鋼：SUS304では、溶体化処理後、800℃付近に保持することにより、 $M_{23}C_6$ はオーステナイト結晶粒界を主に析出し、オーステナイト相内にも微細に分散する。

【0024】なお、上記 M_7C_3 、 $M_{23}C_6$ は、Crを主成分としFeが混合されている炭化物からなる金属間化合物であって、Mは(Cr、Fe)を表す。この金属間化合物は、結晶構造的にはCr-Cが主構成であるが、CrにFeが若干含まれるFe混在の炭化物の構成も含まれる。

【0025】初期接触抵抗は、得られた金属板をそのままの状態として測定した値である。一方、劣化後接触抵抗は、90℃に保持されたpH3の硫酸水溶液中に試料を1000時間浸漬して強制的に劣化した状態とした後の測定値である。

【0026】金属板の接触抵抗の測定は、図6に示す装置を用いた。この装置は、重ね合わせた2枚の金属板の試料40の両側に黒鉛プレート41を挟んでさらに1枚ずつ試料40を積層し、この試料積層体の両側に、ターミナルプレート42、絶縁プレート43、金属製の保持プレート44をこの順でそれぞれ積層し、これをガス加压式のピストン45で加压しながら固定プレート46の間にクランプする。そして、一方のターミナルプレート42を正極、他方のターミナルプレート42を負極として定電流電源から電流を流し、重ね合わせた試料40間の電圧Aと、黒鉛プレート41を挟んだ試料40間の電圧Bを測定し、抵抗を算出した。電圧Aから算出される抵抗は試料40どうし（金属どうし）の接触抵抗であり、電圧Bから算出される抵抗は試料40と黒鉛との接触抵抗である。

【0027】表1で明らかなように、酸処理を行って金属間化合物を突出させた実施例1～5の金属板は、いずれも初期接触抵抗および劣化後接触抵抗が低く、良好な電気伝導性が得られることが確認された。一方、比較例の金属板においては、比較例6～9の初期接触抵抗は実施例と同等であったが、いずれの比較例も、劣化後接触

抵抗が大幅に上昇しており、長期の使用には不適当であることが判った。

【0028】

【発明の効果】以上説明したように、本発明の燃料電池用セパレータによれば、耐食性や電気伝導性と機械的強度とが高いレベルで両立するとともに、ガス通路の形成が容易で生産性の向上を図ることのできるといった効果を奏する。

【図面の簡単な説明】

10 【図1】 本発明の一実施形態に係るセパレータが適用された燃料電池スタックの層構成を概念的に示す縦断面図である。

【図2】 本発明の一実施形態に係るセパレータの一部拡大断面図である。

【図3】 本発明の一実施形態に係るセパレータの変形例を示す一部拡大断面図である。

【図4】 マルテンサイト系ステンレス鋼の炭化物析出挙動を示す線図である。

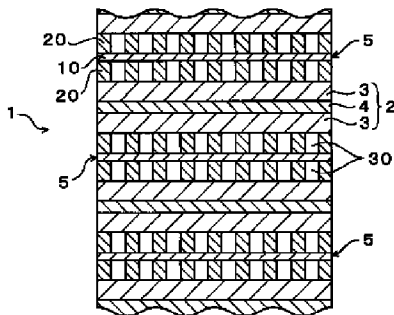
20 【図5】 オーステナイト系ステンレス鋼の炭化物析出挙動を示す線図である。

【図6】 接触抵抗の測定装置を示す縦断面図である。

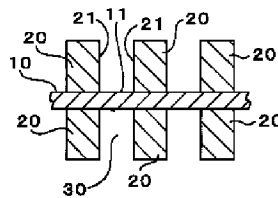
【符号の説明】

- 1…燃料電池スタック
- 2…電極
- 3…ガス拡散電極板
- 4…電解質層
- 5…セパレータ
- 10…金属板
- 11…金属板の表面
- 20…凸条
- 21…凸条の側面
- 30…ガス通路

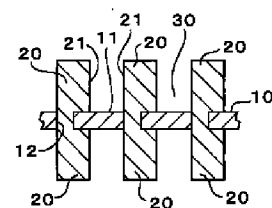
【図1】



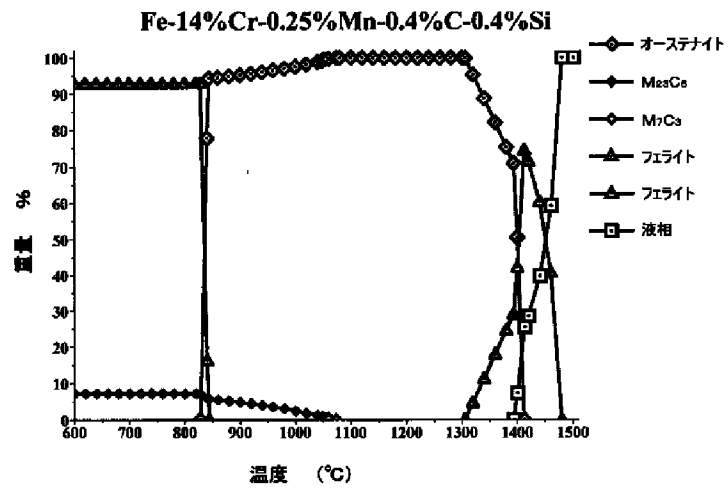
【図2】



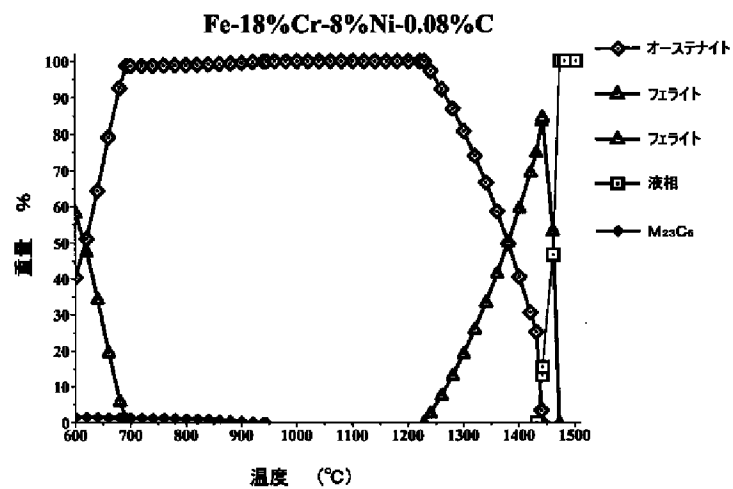
【図3】



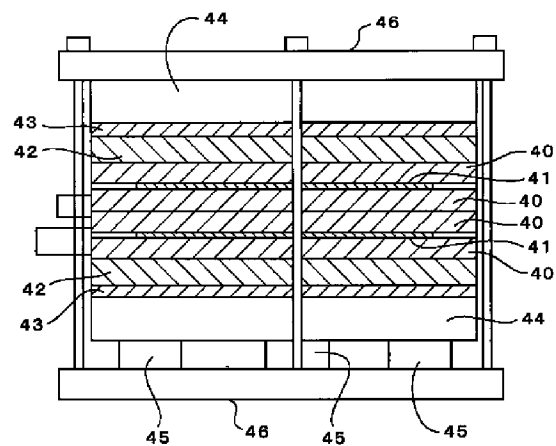
【図4】



【図5】



【図6】



フロントページの続き

(72)発明者 大谷 輝幸
埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会
社本田技術研究所内

(72)発明者 齋藤 信広
埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会
社本田技術研究所内

Fターム(参考) 5H026 AA06 BB04 CC03 EE02 EE06
EE08